

DT05 Rec'd PCT/PTO 29 NOV 2004

Docket No.: 04703/0202167-USO
(PATENT)

IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE

In re Patent Application of:
Kazuhiko Yamamoto et al.

Application No.: Not Yet Assigned

Confirmation No.: N/A

Filed: Concurrently Herewith

Art Unit: N/A

For: SYSTEM FOR PRODUCING ALLOY
CONTAINING RARE EARTH METAL

Examiner: Not Yet Assigned

CLAIM FOR PRIORITY AND SUBMISSION OF DOCUMENTSCommissioner for Patents
P.O. Box 1450
Alexandria, VA 22313-1450

Dear Sir:

Applicant hereby claims priority under 35 U.S.C. 119 based on the following prior foreign application filed in the following foreign country on the date indicated:

<u>Country</u>	<u>Application No.</u>	<u>Date</u>
Japan	2002-155121	May 29, 2002

A certified copy of the aforesaid Japanese Patent Application was received by the International Bureau on July 11, 2003 during the pendency of International Application No. PCT/JP03/06740. A copy of Form PCT/IB/304 is enclosed.

Dated: November 29, 2004

Respectfully submitted,

By 
S. Peter LudwigRegistration No.: 25,351
(212) 527-7700
(212) 753-6237 (Fax)
Attorneys/Agents For Applicant

Rec'd PCT/IPC 29 NOV 2004

PCT/JP 03/06740

日 本 国 特 許 庁
JAPAN PATENT OFFICE

19.06.03

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office

出 願 年 月 日
Date of Application:

2002年 5月29日

出 願 番 号
Application Number:

特願2002-155121

[ST.10/C]:

[JP2002-155121]

出 願 人
Applicant(s):

株式会社三徳

REC'D 11 JUL 2003

WIPO PCT

PRIORITY DOCUMENT
SUBMITTED OR TRANSMITTED IN
COMPLIANCE WITH
RULE 17.1(a) OR (b)

2003年 5月27日

特 許 庁 長 官
Commissioner,
Japan Patent Office

太田 信一郎



出証番号 出証特2003-3039888

【書類名】 特許願

【整理番号】 P02-222

【提出日】 平成14年 5月29日

【あて先】 特許庁長官殿

【発明者】

【住所又は居所】 兵庫県神戸市東灘区深江北町4-14-34 株式会社
三徳内

【氏名】 山本 和彦

【発明者】

【住所又は居所】 兵庫県神戸市東灘区深江北町4-14-34 株式会社
三徳内

【氏名】 芝本 孝紀

【特許出願人】

【識別番号】 000176660

【氏名又は名称】 株式会社三徳

【代理人】

【識別番号】 100081514

【弁理士】

【氏名又は名称】 酒井 一

【選任した代理人】

【識別番号】 100082692

【弁理士】

【氏名又は名称】 蔵合 正博

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 007010

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 , 1

【包括委任状番号】 0019007

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 希土類金属含有合金の製造法及びその製造システム

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 希土類金属含有合金原料を溶融する工程(A)と、工程(A)の合金溶融物から、表面温度700℃以上の合金鋳片を得る工程(B)と、工程(B)で得られた合金鋳片の表面温度が400℃以下に降温する前に、該合金鋳片を400℃以上の所定温度範囲において所定時間保持し、該合金鋳片の合金結晶を所望大きさに均一化する工程(C)と、工程(C)で得られた合金鋳片を100℃以下に強制冷却する工程(D)とを含み、工程(A)～(D)を不活性ガス雰囲気中で連続的に行うことを特徴とする希土類金属含有合金の製造法。

【請求項 2】 工程(B)が、合金溶融物を薄帯状又は薄片状に固化することによって合金鋳片を得る工程(B1)又は合金溶融物を薄帯状又は薄片状に固化した後、該固化物を破碎することにより合金鋳片を得る工程(B2)である請求項1記載の製造法。

【請求項 3】 希土類金属含有合金原料を溶融する溶融炉、溶融炉から出湯する合金溶融物を連続的に合金鋳片に冷却固化する固化手段、合金鋳片の合金結晶を所望大きさに均一化する合金結晶制御手段、及び合金鋳片を強制冷却する冷却手段を少なくとも備え、

前記合金結晶制御手段が、合金鋳片を特定温度範囲において特定時間保持する温度調節装置を備え、

前記固化手段から得られる合金鋳片の表面温度が400℃以下に降温する前に該合金鋳片を前記合金結晶制御手段に供給しうよう、前記固化手段と前記合金結晶制御手段とを配置しており、且つ少なくとも溶融炉、固化手段、合金結晶制御手段及び冷却手段が不活性ガス雰囲気下において実施しうようになした希土類金属含有合金原料の製造システム。

【請求項 4】 前記固化手段が、合金溶湯を薄帯状又は薄片状に冷却固化する冷却固化装置と、溶融炉からの合金溶湯を該冷却固化装置に誘導するタンディッシュとを有することを特徴とする請求項3記載の製造システム。

【請求項 5】 前記固化手段が、冷却固化装置で固化した合金を破碎する破

碎部を有することを特徴とする請求項4記載の製造システム。

【請求項6】 前記合金結晶制御手段の温度調節装置が、回転可能な単管又は中心軸を共有する多重管であり、前記管が、内壁面に所定角度のらせん状に連なるフィンを備え、且つ管内の温度調節が可能な保温層及び／又は加熱部を有し、管内に合金鑄片を供給して前記管を回転させることにより、合金鑄片が所定速度で進行することを特徴とする請求項3～5のいずれか1項記載の製造システム。

【請求項7】 前記合金結晶制御手段と前記冷却手段とが一体に形成され、冷却手段が、請求項6記載の温度調節装置の外側に設けた、温度調節装置の管と中心軸を共有する回転可能な管状冷却器からなり、該管状冷却器が、内壁面に複数のフィンを有することを特徴とする請求項6記載の製造システム。

【請求項8】 前記冷却手段が、前記合金結晶制御手段から搬出される合金鑄片を収納しうる容器状冷却器であることを特徴とする請求項3～6のいずれか1項記載の製造システム。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、磁石材料、水素吸蔵合金、2次電池用負極等に利用可能な希土類金属含有合金を製造するための製造法及びその方法に使用可能な希土類金属含有合金の製造システムに関する。

【0002】

【従来の技術】

磁石材料、水素吸蔵合金、2次電池用負極等に利用可能な希土類金属含有合金を製造するにあたり、原材料である合金溶融物を回転ロールで冷却し、薄帯状の合金を製造するシステムが従来から知られている。この薄帯状の合金は、粉碎して各種用途に利用される。

通常、このような製造システムにおいては、合金製造時における合金の酸化等を防止するために、合金溶融物を回転ロールに供給する時点から、冷却後、回転ロールから合金が剥離するまでの工程を不活性ガス雰囲気下で行なえるように構成している。

前記回転ロールで冷却され、剥離された直後の薄帯状の合金は、常温まで冷却されているわけではなく、通常数百度の温度を有している。そのような高温の合金薄帯は、大気中に暴露されると一瞬にして酸化され、時には燃焼する危険性がある。そのため、高温の合金薄帯は、不活性ガス雰囲気気密性容器に入れられて常温になるまで、通常24時間程度保管されたり、ガス冷却等により急速に常温まで冷却されたりしている。

【0003】

ところで、このような希土類金属含有合金を利用する分野においては、その最終製品への性能要求が、例えば、エレクトロニクス分野等の急激な進歩等に伴い高くなっており、より高性能な物性を示す希土類金属含有合金の開発が望まれている。特に、結晶の粒度をある範囲に揃え、制御することがそのような性能の向上に繋がる。

一般に合金の結晶粒度は、合金製造時における熱履歴に左右される。比較的高温の状態でも長く保持されれば結晶は大きくなり、高温の状態が短ければ小さくなる。そこで、従来、合金の結晶粒度を調整するために、薄帯状合金を鋳造後、室温まで急速に強制冷却し、その後、熱処理炉にて所望条件で熱処理する方法が取られている。

しかしながら、この方法では、室温まで強制冷却した薄帯状合金を大気中に出した後、熱処理炉に導入し、所望の温度まで再加熱する必要があり、処理が煩雑になり易く、エネルギー的にもロスが大きいという問題があり、コスト的にも優れた方法とは言い難い。加えて、量産時には大量の薄帯状合金を処理しなければならないため、熱処理時の温度分布を一樣にすることが困難であり、結晶粒度を均一にすることができなかったり、熱処理前に大気中に出す際に薄帯状合金表面が酸化されたり、大気中の水分の付着により熱処理時に薄帯状合金が酸化される等の問題が生じている。

【0004】

【発明が解決しようとする課題】

従って、本発明の目的は、希土類金属含有合金の製造時や、次工程への移送中における合金の酸化を防止すると共に、合金の結晶粒度を均一にし、高性能な物

性を示す希土類金属含有合金を容易に、且つ効率良く製造することが可能な希土類金属含有合金の製造法及び該方法に使用可能な製造システムを提供することにある。

【0005】

【課題を解決するための手段】

本発明者らは、上記課題を解決するために鋭意検討した結果、従来、希土類金属含有合金における合金結晶を均一化する方法において、合金溶融物を冷却し、薄帯状等の合金鑄片を得、該合金鑄片を常温程度まで強制冷却した後に、合金結晶の制御を行うための所望条件で熱処理を行うのではなく、合金溶融物を冷却し、薄帯状等の合金鑄片を得た後、該合金鑄片を強制冷却する前に特定温度範囲において特定時間保持する一連の工程を不活性ガス雰囲気中において連続的に行うことにより、合金の酸化を十分に抑制し、且つ所望結晶粒度の希土類金属含有合金を短時間で、且つ効率よく製造しうることを見出し本発明を完成した。

【0006】

すなわち本発明によれば、希土類金属含有合金原料を溶融する工程(A)と、工程(A)の合金溶融物から、表面温度700℃以上の合金鑄片を得る工程(B)と、工程(B)で得られた合金鑄片の表面温度が400℃以下に降温する前に、該合金鑄片を400℃以上の所定温度範囲において所定時間保持し、該合金鑄片の合金結晶を所望大きさに均一化する工程(C)と、工程(C)で得られた合金鑄片を100℃以下に強制冷却する工程(D)とを含み、工程(A)～(D)を不活性ガス雰囲気中で連続的に行うことを特徴とする希土類金属含有合金の製造法が提供される。

また本発明によれば、希土類金属含有合金原料を溶融する溶融炉、溶融炉から出湯する合金溶融物を連続的に合金鑄片に冷却固化する固化手段、合金鑄片の合金結晶を所望大きさに均一化する合金結晶制御手段、及び合金鑄片を強制冷却する冷却手段を少なくとも備え、前記合金結晶制御手段が、合金鑄片を特定温度範囲において特定時間保持しうる温度調節装置を備え、前記固化手段から得られる合金鑄片の表面温度が400℃以下に降温する前に該合金鑄片を前記合金結晶制御手段に供給しうるよう、前記固化手段と前記合金結晶制御手段とを配置しており、且つ少なくとも溶融炉、固化手段、合金結晶制御手段及び冷却手段が不活性ガ

ス雰囲気下において実施しうるようになった希土類金属含有合金原料の製造システムが提供される。

【0007】

【発明の実施の形態】

以下、本発明を更に詳細に説明する。

本発明の製造法では、まず、希土類金属含有合金原料を溶融する工程(A)を行う。

工程(A)において、希土類金属含有合金原料は、所望の用途に応じて公知の組成等に基づいて適宜選択することができる。この合金原料は、各種金属の混合物であっても、また母合金であっても良い。

合金原料の溶融は、坩堝等の溶融炉を用いて行うことができ、溶融条件は公知の条件に基づいて合金組成等に応じて適宜選択することができる。

【0008】

本発明の製造法では、前記工程(A)の合金溶融物から表面温度が700℃以上、好ましくは800℃以上の合金鋳片を得る工程(B)を行う。

工程(B)は、例えば、合金溶融物を薄帯状又は薄片状に固化することによって合金鋳片を得る工程(B1)又は合金溶融物を薄帯状又は薄片状に固化した後、該固化物を破碎することにより合金鋳片を得る工程(B2)により実施できる。

工程(B1)及び(B2)において、合金溶融物を薄帯状又は薄片状にするには、例えば、双ロール、単ロール等のロール冷却固化装置、回転円盤等を用いたディスク冷却固化装置、その他公知の冷却固化装置を用いて実施できる。また、各冷却固化装置には、厚さが均一な合金鋳片を得るために、合金溶融物の流れを制御できるタンディッシュ等を設けることができる。

冷却固化装置による冷却条件は、目的の希土類含有合金に応じて公知の条件等を勘案して適宜選択することができる。通常、冷却速度100～1000℃/秒程度で実施できる。

前記工程(B2)における破碎は、例えば、ロール冷却固化装置から剥離してくる合金固化物が、該剥離時の勢いで衝突することにより破碎しうる合金衝突面を有する板状物等を所望箇所に設置することにより行うことができる。

前記冷却固化装置により得られる合金鋳片の表面温度は、通常、700℃以上程度であり、該合金鋳片を常温度まで冷却するためには合金鋳片の量にもよるが、量産規模の場合には、通常5～30時間程度放置するか、若しくは強制冷却する必要がある。工程(B)においては、強制冷却する工程を含まず、且つ得られる合金鋳片の表面温度は700℃以上を保持した状態で次の工程(C)に供する必要がある。

【 0 0 0 9 】

本発明の製造法では、工程(B)で得られた合金鋳片の表面温度が400℃以下に降温する前に、該合金鋳片を400℃以上の所定温度範囲において所定時間保持し、該合金鋳片の合金結晶を所望大きさに均一化する工程(C)を行う。

工程(C)において、工程(B)で得られた合金鋳片の表面温度が100℃以下に降温した後に合金結晶の制御を行う場合、該制御に要するエネルギーのロスが大きくなる。従って、工程(C)においては、工程(B)で得られた合金鋳片の表面温度が400℃以下、好ましくは500℃以下に降温する前に合金結晶を所望大きさに均一化する操作を行う必要がある。合金結晶の制御は、通常、合金鋳片が特定の高温状態で保持される時間が長ければ結晶が大きくなり、その時間が短ければ小さくなる。また、その温度や時間は、合金組成によっても大きく異なる。従って、得られる合金組成や所望の目的に応じて、合金結晶の大きさを決定し、該合金結晶の大きさとなるように特定温度範囲及び特定時間に保持することにより合金結晶の制御を行うことができる。

【 0 0 1 0 】

工程(C)において、特定温度範囲は、その合金鋳片の合金結晶が成長しうる温度範囲であれば良く、合金組成及び合金鋳片の厚さ等により適宜選択することができる。通常400℃以上、好ましくは500～800℃の範囲から適宜選択することができる。従って、工程(B)により得られた合金鋳片が工程(C)に供される際の合金鋳片の表面温度が、合金結晶が成長する温度範囲に達している場合にはその温度を保持すれば良く、達していない場合には工程(C)において合金結晶が成長する温度範囲まで加温することができる。

一方、工程(C)において、前記特定温度範囲に保持する特定時間は、所望する

合金結晶の大きさに応じて適宜選択できる。この特定時間は、合金組成、所望する合金結晶の大きさ等により大きく変動するが、工程(B)で得られた合金鑄片の表面温度を400℃以下に降温させる前に特定温度範囲に保持することにより、通常1秒間～1時間程度、好ましくは2秒間～30分間程度、更に好ましくは5秒間～20分間の短時間で合金結晶を所望大きさに調整することができる。このような所定温度範囲で所定時間保持する工程を行わない従来の方法では、工程(B)で得られた合金鑄片は常に降温しており、1秒間でも所定温度に保持されることはない。

【 0 0 1 1 】

本発明の製造法では、合金結晶が均一化した工程(C)で調製した合金鑄片を100℃以下、好ましくは室温程度まで強制冷却する工程(D)を行う。

該強制冷却は、通常的气体冷却等の他、後述する本発明の製造システムによる冷却手段等により実施できる。

【 0 0 1 2 】

本発明の製造法では、工程(B)により得られる合金鑄片を常温程度まで強制冷却した後に、合金結晶を均一化する熱処理工程を行う従来の方法とは異なり、前記工程(C)により、工程(D)による強制冷却を行う前に合金結晶を均一化する工程を行うので、従来よりも合金結晶制御のために要するエネルギーを削減することができ、合金溶湯から連続して合金結晶が均一化した合金鑄片を得ることができる。しかも、このような工程(C)においては驚くことに非常に短時間で結晶を均一化することができる。

【 0 0 1 3 】

本発明の製造法では、少なくとも上記工程(A)～工程(D)を含み、これらの工程を不活性ガス雰囲気中で連続的に行う。従って、本発明の製造法においては、合金結晶が所望大きさに均一制御され、且つ常温程度まで冷却された合金鑄片を、酸化の原因となる大氣中に一度も暴露せずを得ることができる。

このような工程により得られる合金鑄片は、従来技術における合金結晶を制御するための熱処理工程を大氣に全く接することなく完了しているので、その後の取り扱いも容易になる。

工程(D)により得られた合金鑄片は、通常、真空引きした気密性容器又は不活

性ガス置換した気密性容器等に収納して所望の目的に使用するために搬送することができる。

【 0 0 1 4 】

本発明の製造法は、例えば、本発明の製造システムを用いて実施することができる。

本発明の製造システムは、溶融炉、固化手段、合金結晶制御手段及び冷却手段を少なくとも備えた、少なくともこれらの手段を不活性ガス雰囲気下に保持するものである。

前記溶融炉としては、坩堝等を用いた通常の真空加熱容器に、例えば、所定軸において前記真空加熱容器が傾倒し、内部の合金溶融物を流出させることができる傾倒手段を有する溶融炉が使用できる。前記溶融炉は、合金溶融物を一定流量で流出させうることが好ましい。

【 0 0 1 5 】

前記固化手段は、合金溶融物を連続的に薄帯状や薄片状等の形状に固化させるものであって、例えば、双ロール、単ロール等のロール冷却固化装置、回転円盤等を用いたディスク冷却固化装置、その他公知の冷却固化装置を有する冷却固化装置を用いることができる。

前記固化手段は、タンディッシュ等を備えることが好ましい。このタンディッシュとしては、溶融炉からの合金溶融物が流通するための底面部と、この底面部の両側からの合金溶融物の流出を防止する側面部とを備える通常のタンディッシュを用いることができる他、溶融炉から流出してくる合金溶融物を一時的に貯湯するように流速を遅延し、合金溶融物を冷却固化装置に略均一流量で供給し得る構造としたタンディッシュを用いることもできる。このような構造のタンディッシュとしては、前記底面部に、例えば複数の合金溶融物流通通路を設けた堰き板を設置した構造等を備えるタンディッシュが挙げられる。

前記固化手段は、前記冷却固化装置で得られた固化物を更に破碎する破碎部を備えていても良い。該破碎部は、前記固化物を1cm角程度の大きさに破碎できるものであれば特に限定されず、前記冷却固化装置からの排出速度を利用する衝撃破碎板やフェザーミル等が挙げられる。

前記衝撃破砕板は、冷却固化装置で冷却された固化物が、排出される勢いで衝突しうる位置に設けることができる。この衝撃破砕板は、例えば、金属板、セラミックス構造体等で形成された硬質な板状物であれば良い。

【 0 0 1 6 】

前記合金結晶制御手段は、合金鋳片の合金結晶を所望大きさに均一化するものであって、合金鋳片を特定温度範囲において特定時間保持しうる温度調節装置を備える。

前記温度調節装置は、合金鋳片が特定時間、特定温度に保持できるものであれば特に限定されないが、前記固化手段から得られる合金鋳片を連続的に温度調節可能なものが好ましい。例えば、回転可能な単管又は中心軸を共有する多重管であり、前記管が、内壁面に所定角度のらせん状に連なるフィンを備え、且つ管内の温度調節が可能な保温層及び／又は加熱部を有し、管内に合金鋳片を供給して前記管を回転させることにより合金鋳片が所定速度で進行しうる装置が好ましい。このような装置としては、ロータリーキルン方式等の外熱式電気炉を有する装置が好ましい。ロータリーキルン方式の場合、温度調節の均一性を高めるため、キルン内壁にらせん状のフィンを設け、移送速度を略一定に制御しうる構造を有することが好ましい。また、トンネル内を所定温度に保持しうるトンネル炉形式の装置を用いることもできる。トンネル炉形式の装置を用いて合金鋳片を移送するには、トンネル内にベルトコンベアーや振動板を設けて行うことができる。トンネル炉形式の場合、温度調節の均一性を確保するには、例えば、トンネル内に略一定量の合金鋳片が供給されるように、入口に供給量を制御するガイド等を設けることが好ましい。

【 0 0 1 7 】

本発明の製造システムにおいて、合金結晶制御におけるエネルギーのロスや、結晶制御時間を短縮するために、前記固化手段と前記合金結晶制御手段とを、固化手段から得られる合金鋳片の表面温度が400℃以下に降温する前に合金結晶制御手段に供給しうるように配置する必要がある。このような配置は、システムを構成する各手段との関係において適宜決定することができる。

【 0 0 1 8 】

前記冷却手段は、前記合金結晶制御手段により温度調節された合金鋳片を、比較的短時間、通常1時間以内、好ましくは30分間以内で常温まで冷却しうるものであれば特に限定されない。例えば、前記管状の温度調節装置からなる合金結晶制御手段と一体に形成し、前記管状の温度調節装置の外側に設けた、温度調節装置の管と中心軸を共有する回転可能な管状冷却器、前記合金結晶制御手段から搬出される合金鋳片を収納しうる容器状冷却器等が挙げられる。

前記管状冷却器は、例えば、管状冷却器の管壁内部又は管壁外側に、水や冷却ガス等の冷媒が流通する冷却機構を備えた管状冷却器等が挙げられる。該管状冷却器の内壁には、管の一端から他端に対して回転軸と略水平の多数のフィンを設け、合金鋳片が一様に容器内壁に接するようにすることが好ましい。また、該管状冷却器は、冷却時には水平に保持され、冷却終了後、合金鋳片を管状冷却器外へ搬出するために、回転軸がある程度傾動可能にすることもできる。

前記容器状冷却器は、前記合金結晶制御手段から搬送される合金鋳片を収納する収納容器の壁を中空構造とし、該中空構造内に水や冷却ガス等の冷媒を流通させる管を接続し得る冷却機構を備える容器等が挙げられる。

また、冷却手段は上述の冷却器に限定されるものではなく、例えば、冷却ガス（不活性ガス）を直接合金鋳片に供給して冷却する装置等を用いることもできる。

【0019】

本発明の製造システムにおいては、前記冷却手段を設けることにより、合金鋳片が常温まで冷却されているので、該合金鋳片を製造システムの外へ搬出する際に、実質的に連続に合金を小わけ包装することもできる。また、前記合金結晶制御手段の後に前記冷却手段を設けるので、製造システムの外へ搬出した後、更に粉砕工程等を行う場合であっても、合金鋳片の過度の酸化を生じさせることなく該粉砕工程等へ移行することができる。

【0020】

本発明の製造システムは、前述の溶融炉、固化手段、合金結晶制御手段及び冷却手段を少なくとも備えており、且つこれらが不活性ガス雰囲気下に保持しうるものであれば良い。例えば、これら全てが1つの不活性ガス雰囲気下に保持しうるチャンバー内に設けられていても良いし、各手段がそれぞれ別個のチャンバーに

収容され、各々不活性ガス雰囲気下に保持しうるように構成されていても良い。このようなチャンバーは、不活性ガス雰囲気下に保持するように気密にしたものであって、不活性ガス導入・排出可能な装置を具備したものであればよい。またチャンバーには、内部を減圧しうる公知の減圧装置を設けることが好ましい。

本発明の製造システムにおいては、上記各チャンバーの他に、冷却手段を経た合金鑄片をシステム外へ搬出する出口に、更に他のチャンバーを設けることもできる。該他のチャンバーには、前記出口を連通・遮断しうる連通・遮断手段と、チャンバー内部を不活性ガス雰囲気及び減圧下に保持しうる装置を設けることができる。

このような他のチャンバーを設けることにより、本発明の製造システム内に大気を導入することなく、得られた合金鑄片をシステム外へ搬出することができる。

【0021】

以下に図面を参照して本発明の製造システムの例を具体的に説明するが、本発明のシステムはこれに限定されない。

図1は、本発明の希土類金属含有合金を製造するための製造システムを説明する概略図であって、10は製造システムである。

製造システム10は、不活性ガス雰囲気下及び減圧下にすることができる気密性の第1のチャンバー11と、第2のチャンバー12とから構成されるが、第2のチャンバー12は必要に応じて設けることができるチャンバーである。

第1のチャンバー11は、希土類金属含有合金原料を溶融する溶融炉13と、溶融炉13から出湯する合金溶融物17を薄帯状に冷却固化する回転ロール15、溶融炉13からの合金溶融物17を回転ロール15に誘導するタンディッシュ14、及び回転ロール15から剥離してくる薄帯状の希土類金属含有合金17aを、衝突することのみにより破碎させる合金破碎板16からなる固化手段と、破碎された合金17bの合金結晶を所望大きさに均一化するための合金結晶制御装置20と、該装置20から搬出される合金17cを収納し、強制冷却する容器状冷却器18とを備える。このチャンバー11は、第2のチャンバー12と連通する箇所に、気密性を保持できる開閉自在なシャッター11aを備える。

【 0 0 2 2 】

溶融炉13は、希土類金属含有合金原料を溶融したのち、軸13aを中心に矢印A方向に傾倒して、合金溶融物17を略一定量づつタンディッシュ14へ流通させうる構造となっている。

【 0 0 2 3 】

タンディッシュ14は、合金溶融物17が側面から流出するのを防止する側面部を省略した断面図で示しており、溶融炉13から流出してくる合金溶融物17を整流させて回転ロール15に略均一量で供給するための堰き板14aを備えている。

回転ロール15は、外周面が銅等の合金溶融物17を冷却し得る材料で形成され、一定角速度等で回転可能な駆動装置(図示せず)を備えている。

合金破碎板16は、回転ロール15から剥離してくる希土類金属含有合金17aが連続的に衝突しうる位置に設置された金属製の板状物である。

【 0 0 2 4 】

前記合金破碎板16により破碎された合金17bは、合金組成、冷却速度等によっても異なるが、通常、700℃以上の表面温度を有する。そして、この表面温度が400℃以下にならないような位置に、合金結晶制御装置20を配置する。

合金結晶制御装置20としては、図2に示す、ロータリーキルン方式の合金結晶制御装置20aを用いることができる。該装置20aは、合金17bの導入口21a、合金結晶が制御された合金17cを搬出する出口21b及び熱線22aを配した加熱部22を備えた回転可能な管21から構成されている。該管21の内面には、管21の回転により、導入された合金17bが出口21b側に進行するように、フィン23が設けられている。

この装置20aに導入された合金17bは、加熱部22を適宜作動させることにより所定温度に保持される。また、管21の回転速度やフィン23の設置角度等を調節することにより、該所定温度において所定時間保持される。このように合金17aを所定温度で所定時間保持することにより、所望大きさの均一な合金結晶を有する合金17cを短時間に、効率良く調製することができる。

【 0 0 2 5 】

合金結晶制御装置20の下方には、合金17cを収納し、強制冷却するための容器状冷却器18を備える。該冷却器18は、例えば、図3に示されるように、壁が中空

になっており、冷媒搬入口18xと冷媒搬出口18yとを備え、該中空構造内に冷媒を流通しうる構造になっている。該容器状冷却器18に収納された合金17cを冷却するには、冷却装置30の管31及び管32を前記冷媒搬入口18x及び冷媒搬出口18yにそれぞれ接続し、前記中空構造内に冷却ガス等の冷媒を流通させることにより行うことができる。

【0026】

容器状冷却器18により冷却された合金17cは、冷却器18から冷却装置30を外した後、シャッター11aの方向に移動され、次の空状態の容器状冷却器18が合金17cを収納、冷却するために合金結晶制御装置20の下方に配される。

シャッター11aの方向に移動した、冷却された合金17cを収納した容器状冷却器18は、次に、第2のチャンバー12内に移動する。チャンバー12は、開閉自在なシャッター12aを備え、且つチャンバー12内を不活性ガス雰囲気下にしうるガス導入・排出管及び減圧装置(図示せず)を備える。

冷却された合金17cを収納した容器状冷却器18をチャンバー12内に移動させるには、まず、チャンバー12内を不活性ガス雰囲気としてチャンバー11のシャッター11aを開放し、容器状冷却器18をチャンバー12内に移動した後、シャッター11aを閉じる。次いで、チャンバー12内を真空引きし、容器状冷却器18内を密閉状態とするために蓋19により蓋をした後、シャッター12aを開放し、気密状態の容器状冷却器18をチャンバー12の外部へ搬出する。このようなチャンバー12を設けることにより、チャンバー11を常に不活性ガス雰囲気状態に維持しながら全ての製造工程を実施することが可能になる。

【0027】

次に、図4及び図5を参照して、図2に示す合金結晶制御装置20aの代わりに、合金結晶制御手段と冷却手段とを一体とした装置40又は装置50を用いる場合の製造システムについて説明する。

装置40及び50は、図1に示す装置20と同様に、合金破碎板16により破碎された合金17bの表面温度が前記所定温度以下にならないような位置に設けることができる。

装置(40, 50)は、合金17bの導入口(41a, 51a)、合金結晶が制御された合金17c

を搬出する出口(41b, 51b)及び熱線(42a, 52a)を配した加熱部(42, 52)を備えた回転可能な管(41, 51-1, 51-2)を備え、更に、管(41, 51-2)の外側には、中心軸を共有する回転可能な管状冷却器(45, 55)を備える。要するに、装置40は、合金17bの温度調節装置として単管41を備えるものであり、装置50は、合金17bの温度調節装置として二重管(51-1, 51-2)を備えるものである。二重管(51-1, 51-2)を備える装置50は、例えば、合金17bの温度調節時間を長く取る必要がある場合や設置スペースを短くする際等に利用できる。

管(41, 51-1, 51-2)の内面には、管(41, 51-1, 51-2)の回転により、導入された合金17bが出口(41b, 51b)側に進行するように、フィン(43, 53)が設けられている。ここで、装置50において、導入された合金17bが出口51b側に進行するとは、管(51-1, 51-2)内の合金17bが、管の回転により矢印方向に移動し、最終的に出口51bに進行することを意味する。

【 0 0 2 8 】

管(41, 51-1, 51-2)に導入された合金17bは、加熱部(42, 52)を適宜作動させることにより所定温度に保持される。また、管(41, 51-1, 51-2)の回転速度やフィン(43, 53)の設置角度を調節することにより、該所定温度において所定時間保持される。このように合金17aを所定温度で所定時間保持することにより、所望大きさの均一な合金結晶を有する合金17cを短時間に、効率良く調製することができる。

【 0 0 2 9 】

管状冷却器(45, 55)は、合金結晶が制御された合金17cを搬出する出口(46, 56)及び冷媒を循環させることが可能な冷媒循環管(47a, 57a)を配した冷却部(47, 57)を備えた回転可能な管からなる。また、管状冷却器(45, 55)は、強制冷却した合金17cを出口(46, 56)から管外に搬出するために、搬出時に回転軸が出口側に傾斜するように構成されている。更に、管状冷却器(45, 55)内の出口側には、合金17cを管外に搬出するために、冷却時の回転によっては合金17cに対して何等作用せず、回転軸を傾斜させ、冷却時とは逆回転させることにより、合金17cを出口(46, 56)に誘導することができるフィン(48, 58)が設けられている。

管状冷却器(45, 55)の内面には、合金17cを管状冷却器(45, 55)の内面全体に

均一に接触させることを可能にするフィン(図示せず)を設けることもできる。

【0030】

装置20aの代わりに前記装置(40, 50)を用いることにより、合金結晶を所望の大きさに制御しながら、合金の強制冷却を行うことができる他、製造システムのスペース効率を向上させることができる。従って、図1における容器状冷却器18の代わりに、通常の収納容器を用いることができ、該収納容器に合金17cを収納する際の雰囲気は、必ずしも不活性ガス雰囲気とする必要はなく、不活性ガス雰囲気にしうるチャンバー11内には、溶融炉13から装置(40又は50)までを収容すれば良い場合もある。この際、各装置は必ずしも1つのチャンバー11内に収容される必要はなく、個々に不活性ガス雰囲気にしうるチャンバー内に収容し、各装置を連結管等で接続することもできる。また、装置(40, 50)は、例えば、合金鑄片17bを導入する導入口(41a, 51a)までの導入連絡管内に遮蔽弁(図示せず)を設け、該遮蔽弁で遮蔽して装置(40, 50)内を不活性ガス雰囲気にしうる構成とすることもできる。この際、装置(40, 50)は、不活性ガス雰囲気にしうるチャンバー内に収容する必要はない。

更に、装置50を用いる場合、管51-1内と管51-2内との保持温度は同一温度である必要はなく、異なる温度で保持しても良い。

【0031】

【実施例】

以下、本発明を実施例により更に詳細に説明するが、本発明はこれらに限定されない。

実施例 1

上述の図1に示す製造システム10において、装置20の代わりに図5に示す装置50を用い、容器状冷却器18の代わりに冷却装置を備えていない容器を用いて以下の方法により合金鑄片を調製した。

ネオジム32.8質量%、硼素1.02質量%、アルミニウム0.28質量%、残部鉄で、合計重量が500kgとなるようにそれぞれの原料を秤量し、真空溶解炉13で溶解した後、1430℃で出湯し、水冷銅ロール17a上にタンディッシュ14を通して供給し連続的に凝固させる。ロール17aの表面速度は1.2m/秒で行った。ロール17a上で

凝固した薄帯の剥離位置における放冷面側の表面温度を赤外線温度測定器で測定したところ1035℃であった。該薄帯は、合金破砕板16に衝突し直径約50mm程度の薄片となり装置50の導入口51aへ落下する。この落下した薄帯は、表面温度が750℃以上の状態で、装置50の管51-1に導入され、750℃で10秒間保持されるように管51-1内を移動し、次に、管51-2に導入され、600℃で20秒間保持されるように管51-2内を移動し、管55内に移動する。管55内は水冷されており移動した薄帯は管55内で室温まで強制急冷し、容器に収容する。

次いで、得られた合金薄帯を磁石製造プロセスとして一般的に知られる水素化処理を行い脱水素処理の後、粉砕ガス圧 $7.0\text{kg}/\text{cm}^2$ 、原料供給スピード $4\text{kg}/\text{hr}$ で小型ジェットミルにより粉砕を行った。得られた粉末の粒度分布を、乾式のレーザー回折式粒度分布測定器を用いて測定した。結果を図6に示す。

次に、得られた粉末に粉末配向磁場($1.5\text{MA}/\text{m}$)を印加しながら、成型圧 100MPa で金型成型した。この成型体を、真空中において昇温速度 $5\text{K}/\text{分}$ で $1298\sim 1328\text{K}$ まで昇温し、120分間保持後急冷し時効処理を行って磁石を得た。この磁石の磁気特性を図7に示す。図7において一番上のラインが実施例1の結果である。

【 0 0 3 2 】

比較例 1

実施例1において、装置50を用いずに合金薄帯を得た後、容器中で24時間かけて40℃まで自然冷却した。次いで、実施例1における装置50内における熱処理の代わりに、冷却した薄帯を、不活性ガス雰囲気下、カーボンヒーターによるバッチ式の外熱式熱処理炉で750℃、2時間保持した後、更に600℃、1時間保持し冷却して合金薄帯を調製した。この合金薄帯を、実施例1と同様に水素化処理及び粉砕して粉末化し、得られた粉末の粒度分布を実施例1と同様に測定した。結果を図6に示す。更に、得られた粉末を用いて実施例1と同様に磁石を作製し、磁気特性を測定した。結果を図7に示す。図7において上から2番目のラインが比較例1の結果である。

【 0 0 3 3 】

比較例 2

実施例1において、装置50を用いずに合金薄帯を得た後、水冷容器に導入し5時

間かけて40℃まで自然冷却した。次いで、実施例1における装置50内における熱処理の代わりに、冷却した薄帯を、不活性ガス雰囲気下、カーボンヒーターによるパッチ式の外熱式熱処理炉で750℃、2時間保持した後、更に600℃、1時間保持し冷却して合金薄帯を調製した。この合金薄帯を、実施例1と同様に水素化処理及び粉碎して粉末化し、得られた粉末の粒度分布を実施例1と同様に測定した。結果を図6に示す。更に、得られた粉末を用いて実施例1と同様に磁石を作製し、磁気特性を測定した。結果を図7に示す。図7において一番下のラインが比較例2の結果である。

【0034】

図6の結果より、実施例1では、比較例1及び2における均質化のための熱処理時間に比して極めて短時間の熱処理を施したのみであるのに、比較例1及び2で得られた合金粉末よりも粒度分布が狭い合金粉末が得られることが判る。従って、実施例1で得られた合金薄帯は、比較例のものに比して結晶粒度が均一であることが判る。

図7の結果より、実施例1で得られた合金粉末を用いた磁石は、比較例1及び2で得られた合金粉末を用いた磁石に比して磁石特性に優れることが判る。

【図面の簡単な説明】

【図1】

本発明の希土類金属含有合金を製造するための製造システムの一例を示す概略図である。

【図2】

本発明の製造システムに用いるロータリーキルン方式の合金結晶制御装置の一例を示す概略図である。

【図3】

本発明の製造システムに用いる容器状冷却器の一例を示す概略図である。

【図4】

本発明の製造システムに用いる合金結晶制御手段と冷却手段とを一体的に有する装置の一例を示す概略図である。

【図5】

本発明の製造システムに用いる合金結晶制御手段と冷却手段とを一体的に有する装置の他の例を示す概略図である。

【図 6】

実施例及び比較例において調製した合金粉末の粒度分布を示すグラフである。

【図 7】

実施例及び比較例で調製した磁石の磁気特性を示すグラフである。

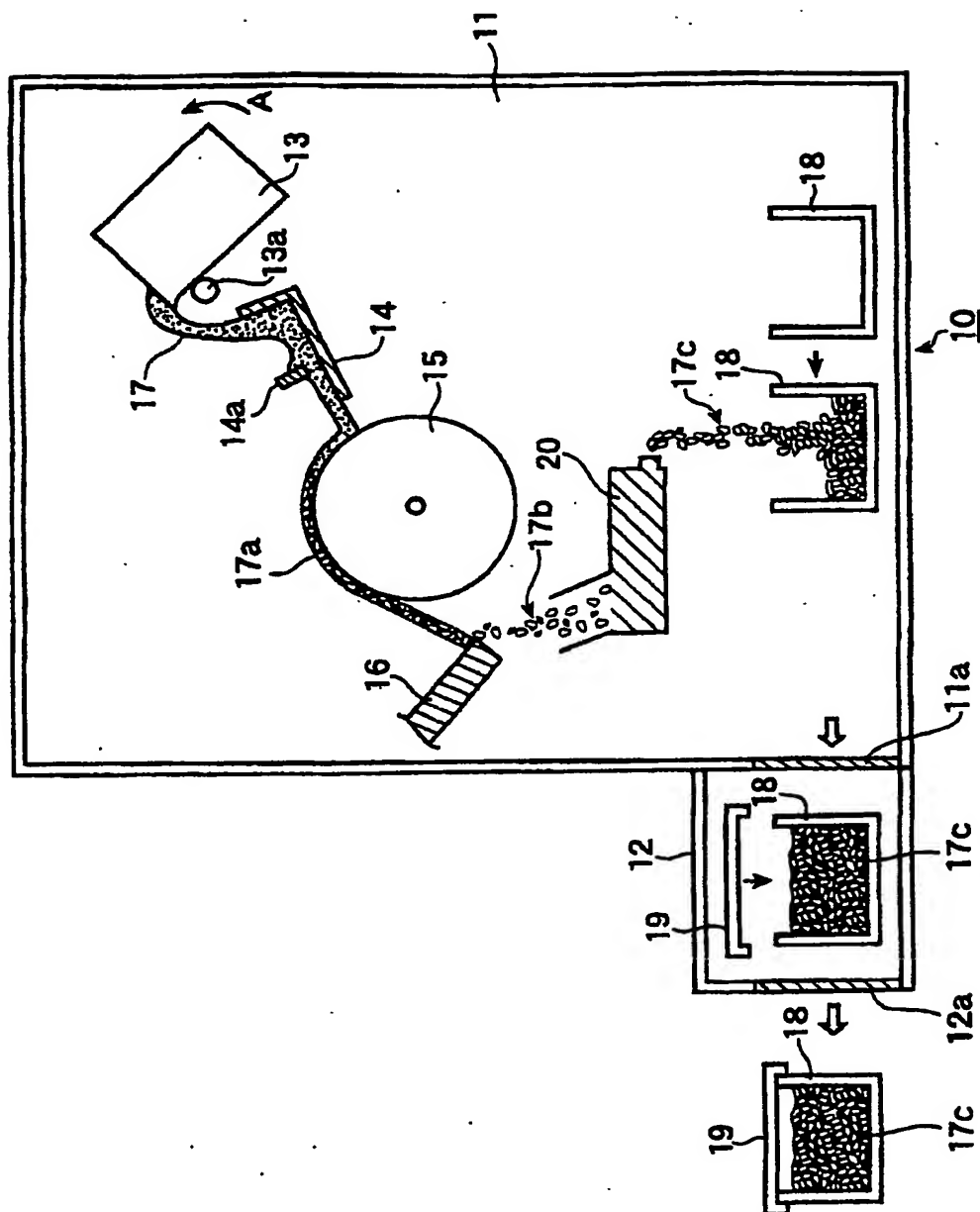
【符号の説明】

- 10 : 製造システム
- 13 : 溶融炉
- 14 : タンディッシュ
- 15 : 回転ロール
- 16 : 合金破碎板
- 17 合金溶融物
- 17a : 希土類金属含有合金
- 17b : 破碎された合金
- 17c : 合金結晶が制御された合金
- 18 : 容器状冷却器
- 20 : 合金結晶制御装置
- 20a : ロータリーキルン方式の合金結晶制御装置
- 21、31、32 : 管
- 22、42、52 : 加熱部
- 23、48、58 : フィン
- 30 : 冷却装置
- 40、50 : 合金結晶制御手段及び冷却手段とを一体にした装置
- 51-1、51-2 : 二重管
- 45、55 : 管状冷却器

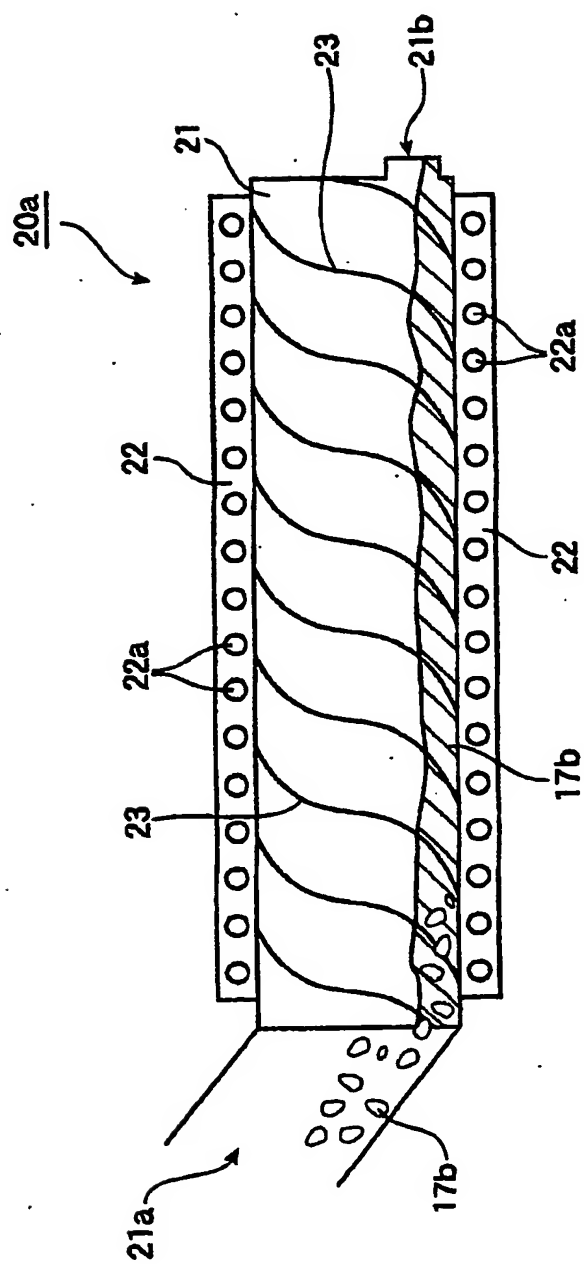
【書類名】

図面

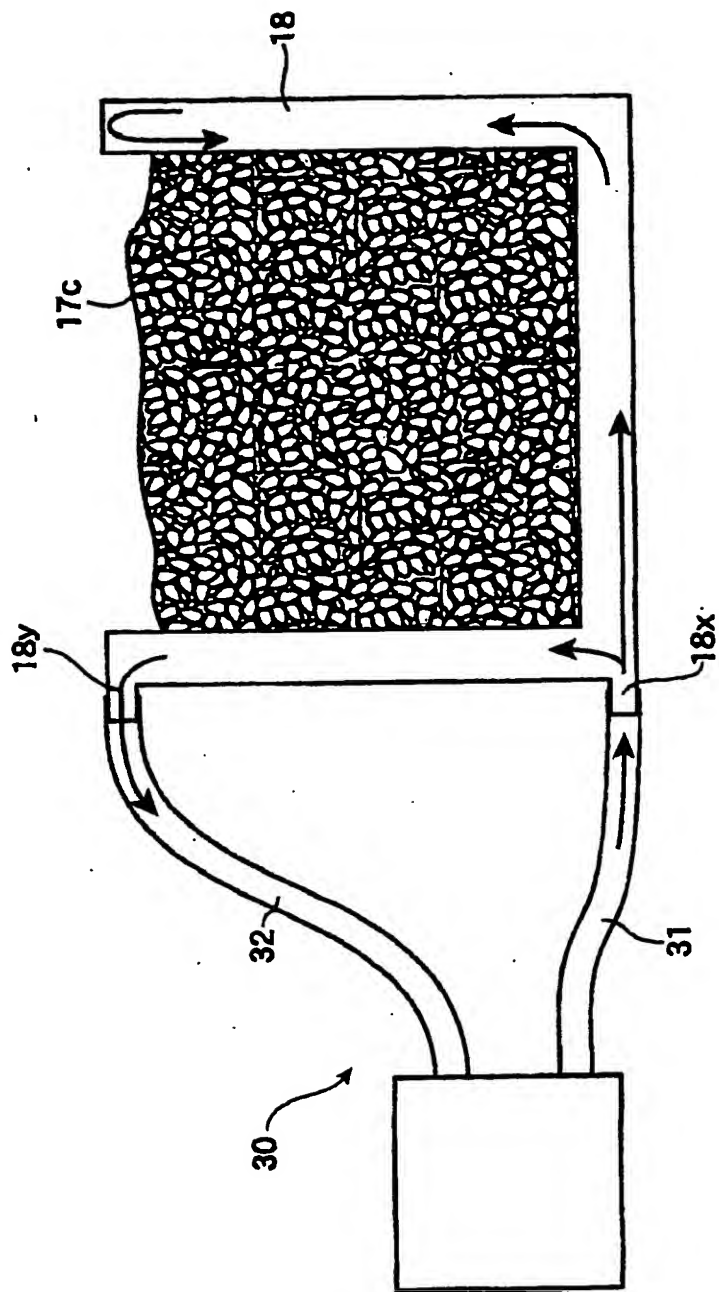
【図1】



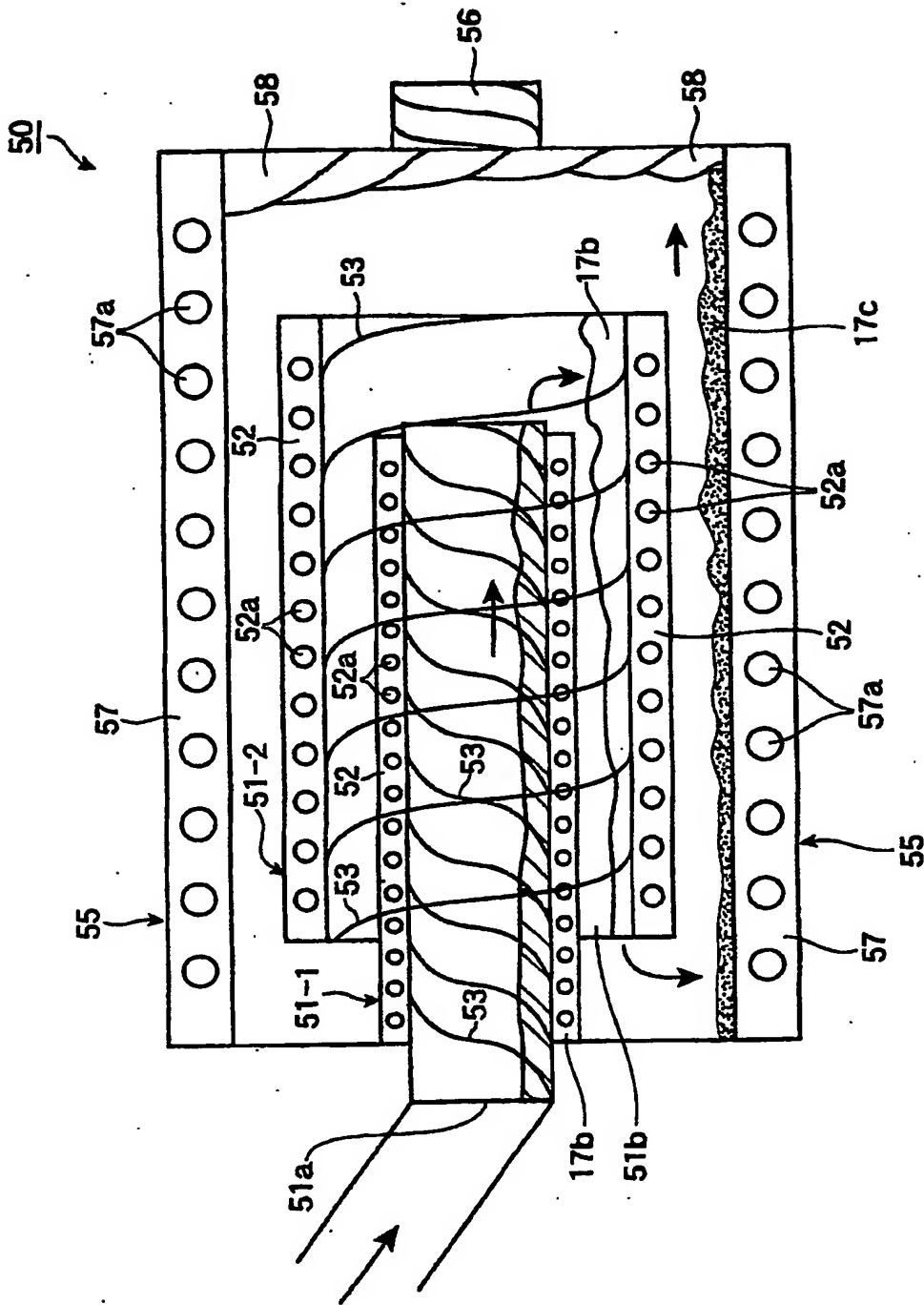
【図 2】



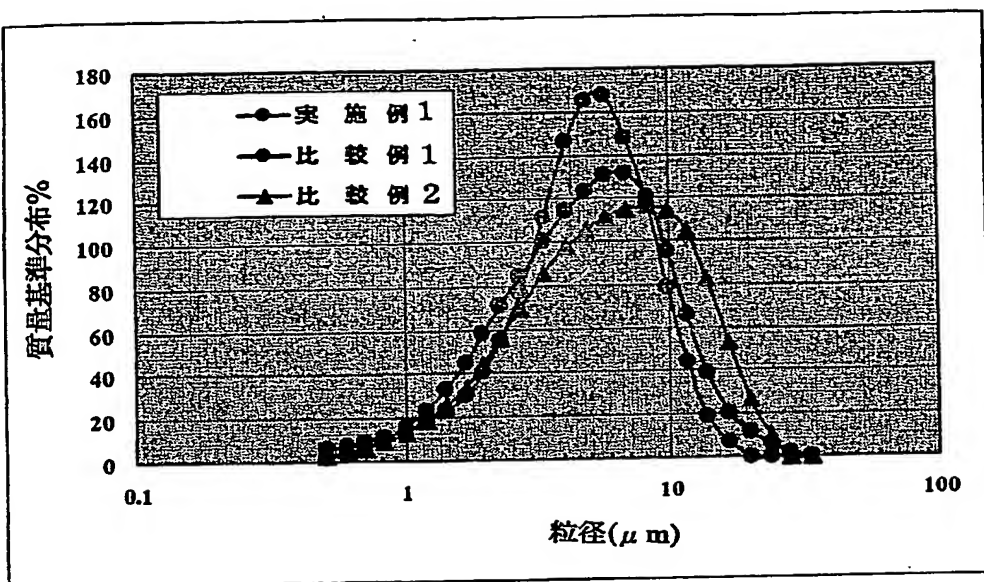
【図 3】



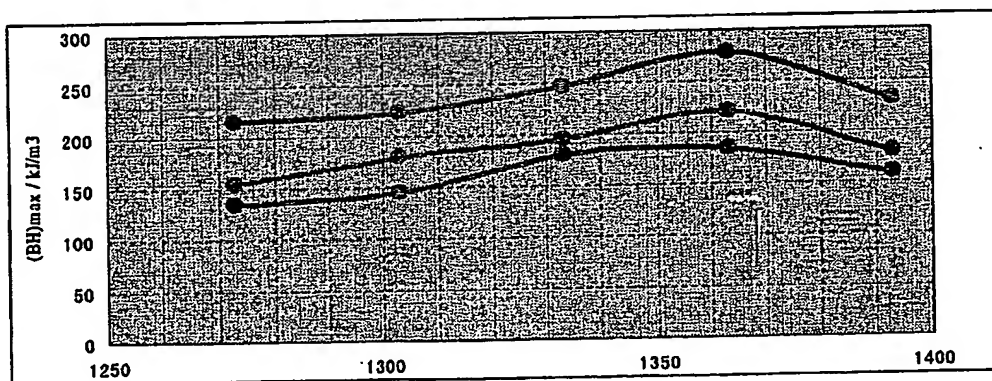
【図 5】



【図 6】



【図 7】



【書類名】 要約書

【要約】

【課題】希土類金属含有合金の製造時や、次工程への移送中における合金の酸化を防止すると共に、合金の結晶粒度を均一にし、高性能な物性を示す希土類金属含有合金を容易に、且つ効率良く製造することが可能な希土類金属含有合金の製造法及び該方法に使用可能な製造システムを提供すること

【解決手段】本発明の製造法は、希土類金属含有合金原料を溶融する工程(A)と、合金溶融物から、表面温度700℃以上の合金鑄片を得る工程(B)と、合金鑄片の表面温度が400℃以下に降温する前に、該合金鑄片を400℃以上の所定温度範囲において所定時間保持し、該合金鑄片の合金結晶を所望大きさに均一化する工程(C)と、工程(C)の合金鑄片を100℃以下に強制冷却する工程(D)とを含み、工程(A)～(D)を不活性ガス雰囲気中で連続的に行うことを特徴とする。

【選択図】 図1

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号

[000176660]

1. 変更年月日 2000年 4月25日

[変更理由] 名称変更

住 所 兵庫県神戸市東灘区深江北町4丁目14番34号

氏 名 株式会社三徳

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning
Operations and is not part of the Official Record**

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

☐ BLACK BORDERS

☐ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES

☒ FADED TEXT OR DRAWING

☐ BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING

☐ SKEWED/SLANTED IMAGES

☐ COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS

☐ GRAY SCALE DOCUMENTS

☐ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT

☐ REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY

☐ OTHER: _____

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.